

Fe-Si-Al系高透磁率材料における磁気特性の温度依存性

著者	田中 熙巳
号	1356
発行年	1992
URL	http://hdl.handle.net/10097/10163

氏 名 田 中 照 巳

授 与 学 位 博 士 (工 学)

学位授与年月日 平成 5 年 2 月 10 日

学位授与の根拠法規 学位規則第 5 条第 2 項

最 終 学 歴 昭 和 35 年 3 月

東京理科大学理学部物理学科卒業

学 位 論 文 題 目 Fe-Si-Al 系高透磁率材料における磁気特性
の温度依存性

論 文 審 査 委 員 東北大学教授 本間 基文 東北大学教授 西澤 泰二
東北大学教授 藤森 啓安

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 緒 論

Fe-9.5mass%Si-5.5mass%Al (以下 mass%は省略する) 組成近傍の Fe-Si-Al 三元系合金は、センダスト合金と呼ばれ、優れた軟磁気特性 (高透磁率, 低保磁力) を示す。この合金は脆い合金のため、開発当時は圧粉材として用いられたが、その後、鉄酸化物 (フェライト) 高透磁率材料にとって代わられていた。

近年の映像磁気記録・再生技術の発展にともなって、その高い磁束密度と耐磨耗性が注目され、磁気ヘッド用磁心材料として、再び実用されるに至った。しかし、センダスト合金の磁気特性は合金組成、あるいは熱処理条件に敏感であるばかりでなく、同一合金においても特性が不安定であって、合金組成ならびにそれに対応する熱処理条件の選定上での妨げになっていた。

本研究は、その実態とその原因を把握するために、磁気特性の温度依存性および組成依存性を詳細に調べ、磁心材料にとっての基本物性である結晶磁気異方性および磁気歪みの温度依存性との関係において解明したものである。さらに、熱処理、樹脂モールドによる磁気特性の変化との関連など、実用上の諸問題を解決したものである。

第 2 章 Fe-Si-Al 系合金の磁気特性の温度依存性

室温まで徐冷したセンダストの合金 (Fe-9 ~ 11Si-5 ~ 7 Al) について、交流初透磁率 μ_{eff} 、初透磁率 μ_s 、最大透磁率 μ_{max} および保磁力 H_c の温度依存性をそれぞれ、 -10°C から 60°C までの温度範囲内で測定するとともに、 μ_{eff} についてはさらに広い組成範囲の合金 (Fe-5 ~ 12Si-3

～10Al) において、 -150°C から磁化が消滅するまでの温度範囲で温度依存性を調べた。

印加磁界 5 mOe (0.4 A/m) での μ_s は測定したすべての合金において、ホプキソン効果による極大とは異なるいわゆる第2極大を示した。 μ_{max} も最大値を示すが、その温度は μ_s が極大を示す温度とは必ずしも一致しない。周波数 1 KHz の交流磁界のもとでの μ_{eff} も著しい第2極大を示した。この極大を示す温度 (以下、ピーク温度 T_p とよぶ) は μ_s が極大を示す温度と良く一致していた。 μ_{eff} が極大を示す温度 T_p と合金組成との関係 (図1) および T_p における μ_{eff} と合金組成との関係を明らかにした。

優れた磁気特性を示す合金は室温付近で第2極大を示すため、室温での温度係数が大きく、測定温度を一定に、正確に保持しない限り測定値が一定しない。本章では 20°C における磁気特性と合金組成との関係を明らかにした。 μ_s 、 μ_{max} および H_c の 20°C における値の組成依存性を、それぞれ三元系組成図上に等高線で示すと、 μ_s には最大値を示す組成で互いに交差する2つの尾根が存在し、 μ_{max} には1つの尾根しか存在しない。また、 H_c の場合は μ_{max} の尾根と同じ組成領域に一つの谷が存在する。

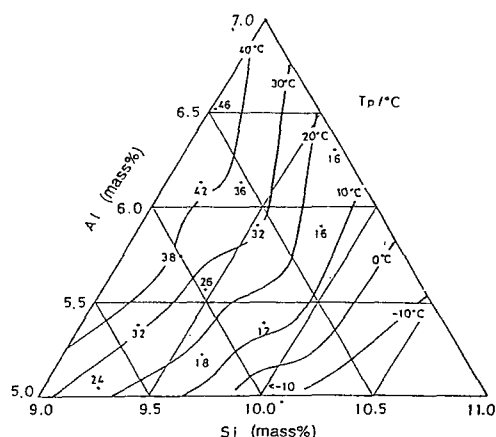


図1 除冷されたセンダスト合金の μ_{eff} のピーク温度 T_p と合金組成との関係 (試料の厚さ: 1 mm)

第3章 Fe-Si-Al 系合金の多結晶磁気歪みおよび結晶磁気異方性

高透磁率材料の磁化過程においては、磁壁の移動、磁化の回転など様々な過程が生じ得るが、いずれにおいても、その初透磁率にはその合金の磁化の強さ I_s 、結晶磁気異方性 K 、多結晶磁気歪み λ_s が重要な役割を果たす。

本章では、まず徐冷した多結晶試料を用い、 0°C から 60°C の温度範囲で磁束密度 B_{10} および λ_s の温度依存性を測定した。これらは、上記の温度範囲ではいずれも大きな変化を示さないことが明らかにされた。このことは初透磁率の温度依存性における第2極大に対して K の温度依存性が果たしている役割が大きいことを示している。本章では、直接 K の温度依存性を測定するのではなく、 λ_s に関連する弾性磁気異方性 K_s と K の2種の磁気異方性が磁化過程に大きな影響を与え、と考え、これらが同時に、また相加的に働き、初

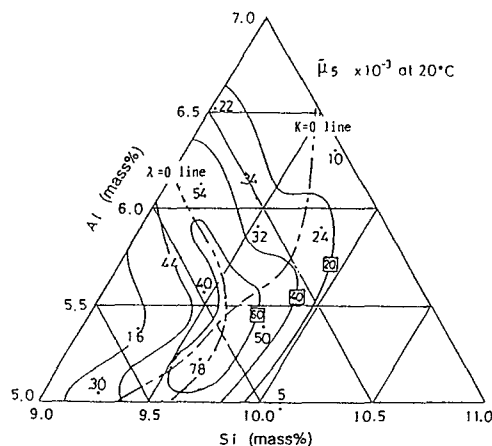


図2 除冷されたセンダスト合金の 20°C における μ_s の組成依存性と、 $K=0$ および $\lambda_s=0$ となる組成との関係

透磁率はその逆数に比例すると仮定することにより μ_{eff} の温度依存性を検討した。この結果、 μ_{eff} が極大を示す温度 T_p は K が零になる温度 $T_{K=0}$ に対応していることが明らかにされた。このことは、 $T_{K=0}$ を容易に、精度よく求めることができ、 $T_{K=0}$ と組成との関係も比較的容易に定めることができることを示している。 T_p が 20°C と推定される組成を結んだ組成線 (図1) を 20°C における $K=0$ 組成線として求めた。また、 μ_{eff} の極大値はその合金の λ_s の大きさに関係していることを示した。

第2章で得られた 20°C における μ_s の組成依存性を示す三元系組成図上の等高線図の2つの尾根は、それぞれ $\lambda=0$ 組成線および $K=0$ 組成線に対応しており (図2)、また、 μ_{max} の等高線図の尾根あるいは H_c の低い値を示す等高線図の谷の組成線は $\lambda=0$ 組成線に対応していることが明らかにされた。このことは、初透磁率は磁気歪みと結晶磁気異方性の何れの影響をも大きく受けるが、最大透磁率、あるいは保磁力は磁気歪みによる影響をより大きく受けることを示している。

実用材料にとっては、使用温度付近での磁気特性の温度係数は重要である。 20°C で最も優れた特性を示す $K=0$ 、 $\lambda=0$ となる組成付近の合金は、 20°C における μ_{eff} の温度係数が最も高く、例えば 1°C の温度変化に対して 500 以上の変化を示した。したがって、このような材料を使用する際には使用環境の温度制御が重要である。また、実用上は特性を犠牲にしても、むしろ、熱安定性の高い合金組成を選択することが望ましいと考えられる。

第4章 Fe-Si-Al 系合金の熱処理と磁気特性

センダスト合金の磁気特性の熱処理による改善は、規則-不規則変態に依存すると考えられた。しかし、本系合金は、高温のB2型規則相が 1000°C から 900°C の温度範囲で DO_3 規則相に変態し、さらに、 DO_3 規則相生成温度以下の温度範囲において、他相の存在は認められないことが明らかにされた。したがって、 900°C より低い温度領域での熱処理による磁気特性の向上改善は、主として、 DO_3 規則相の規則度の変化にともなう K および λ_s の変化、また炭素など浸入型元素の挙動によると考えられる。

本章では、熱処理 (焼入れ温度 800°C ~ 400°C で変化) を加えた合金の K の変化を K が零となる温度の変化からとらえることとした。また、熱処理による DO_3 規則相の規則度の変化と $K=0$ 温度の変化との関連を検討した。この結果、 $K=0$ の温度が焼入れによって著しく変化する合金と、ほとんど変化しない合金があることが明らかにされた (図3)。一方、 λ_s は焼入れ温度によってほとんど変化しない。したがって、熱処理による K の改善が磁気特性の向上に寄与できるのは、 λ_s が小さい組成の合金に限定されることが明らかとなった。

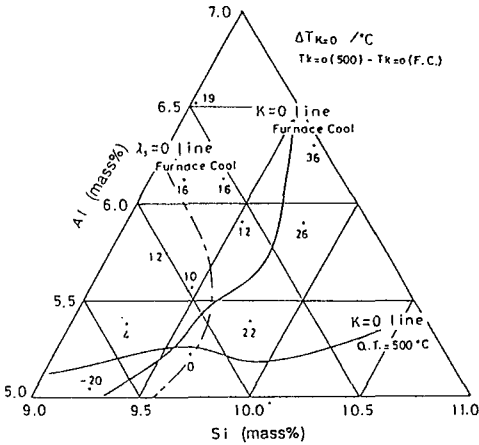


図3 除冷されたセンダスト合金および 500°C からシリコンオイルに焼入れされた合金の $K=0$ 組成線の変化

本研究において、400℃から焼入れ処理されたFe-9.7Si-5.4Al 合金の μ_s は 380×10^3 に達し、これまでに報告された最も高い値685000のほぼ6倍に近い値が得られた。 μ_{max} も3倍で、 H_c ともに優れた値が得られた。

第5章 樹脂モールドされた Fe-Si-Al 系合金の磁気特性とその温度依存性

高透磁率材料が磁気ヘッド磁心として用いられる場合モールドされる場合が多い。この際、磁心材料に応力が加わり特性が劣化することが知られていたがその実態は必ずしも明かでなかった。

本章では、エポキシ樹脂を用いてセンダスト合金のリング状態試料をモールドし、 μ_{eff} の温度依存性および20℃における値と合金組成との関係を調べた。また、その結果を樹脂モールドによって導入される応力の温度による変化と磁気歪みとの関係から考察した。モールドによる力は圧縮力であり、かつ温度の低下にともなって増大すること、その際リング形状の板材の内部の要素片に加わる応力は板厚方向および磁路方向には圧縮応力、径の方向には引張応力であることが明らかにされた。したがって、 $\lambda_s < 0$ の組成領域の合金は磁路方向に一軸性の弾性磁気異方性 K_s が誘導され、 $\lambda_s > 0$ の組成領域の合金とは逆に、応力の増加にともない透磁率が増加する。

樹脂モールドされたリング試料においては、温度による応力の変化にともなう K_s の変化が K の温度依存性に加わるため、樹脂モールド後の磁気特性の温度依存性はモールド前の温度依存性と異なる(図4)。樹脂モールドによる K_s の変化を利用することによって、図中の9559合金のように広い温度範囲の温度係数を小さくできることが明らかにされた。

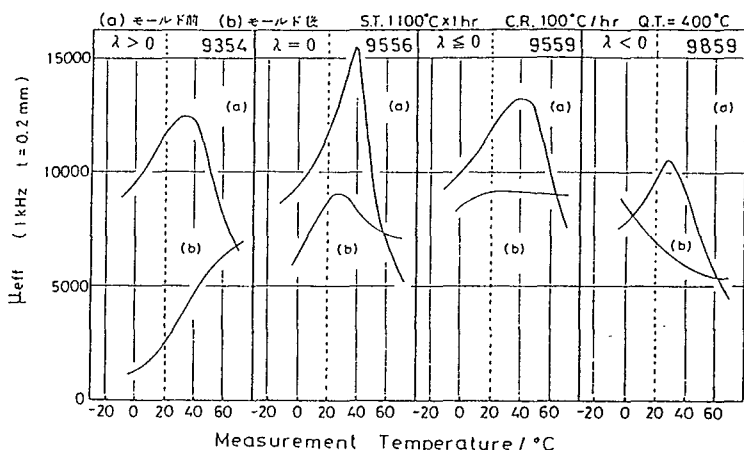


図4 400℃からシリコンオイルに焼入れされたセンダスト合金の樹脂モールド前後の μ_{eff} の温度依存性(試料厚:0.2mm)

20℃における μ_{eff} の値のモールドによる低下は $\lambda_s = 0$ 付近の組成の合金の場合最も小さく、 $\lambda_s > 0$ の組成領域の合金の場合著しい、実用上、特性的には $\lambda_s = 0$ の合金の使用が望ましいと考えられるが、 $\lambda_s > 0$ 組成領域の合金の劣化の度合いが大きいため、合金作成時の組成の変動に対する安全性を考慮して、わずかに λ_s が負となる合金を選定するのが望ましい。

第6章 結 論

本章では本研究で得られたFe-Si-Al系高透磁率材料に関する新しい知見および実用上の意義を総括してある。

審 査 結 果 の 要 旨

高い透磁率を示す Fe-9.5Si-5.5Al (mass%) 組成近傍の合金はセンダスト合金と呼ばれ、磁束密度と耐磨耗性の高い磁心材料である。しかし磁気特性の基本となる透磁率が組成のみならず温度に敏感であり、実用上、その挙動を明確にすることが重要な課題である。本論文はセンダスト系合金の透磁率を中心にして、磁気特性の温度依存性におよぼす組成、熱処理および樹脂モールドによる影響を研究した結果をまとめたものであり、全編 6 章よりなる。

第 1 章は緒論である。

第 2 章では、センダスト系合金の磁気特性の温度依存性におよぼす組成の影響を調べ、透磁率がキュリー温度付近のホブキンソン効果による増大とは別に、それ以下の温度で第 2 極大を示すことを確認し、その極大を示すピーク温度と組成との関係を明らかにしている。

第 3 章では、第 2 章で得られた磁気特性の温度依存性について多結晶磁気歪みおよび結晶磁気異方性の温度依存性との関係を検討し、透磁率の温度依存性が主に結晶磁気異方性の温度依存性に対応し、ピーク温度は結晶磁気異方性が零となる温度であることを明らかにしている。

第 4 章では、高温相 B2 から DO₃ 相への変態温度を求め、DO₃ 相の規則度と磁気異方性および磁気特性との関係を検討している。規則度の変化は主に結晶磁気異方性に影響を与えることを示し、組成と熱処理条件の選定によって、初透磁率において従来値のほぼ 6 倍の 3.8×10^5 の特性を得ている。

第 5 章では、樹脂モールドした環状試料の磁気特性およびその温度依存性について検討している。樹脂モールドによって磁路方向に圧縮応力が発生し、温度の低下によって増大するために、磁気歪みが正の合金において透磁率の低下が著しく、低温ほどそれが大きいことを明らかにしている。

第 6 章は総括である。

以上要するに本論文は、センダスト合金の磁気特性の温度依存性を調査するとともに、それらと磁気異方性との関係を明らかにし、透磁率の向上とその熱的安定性に対し重要な知見を与えたもので、材料物性学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。